(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
4. Januar 2001 (04.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/00700 A2

(51) Internationale Patentklassifikation : C08G 18/00

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP00/05392

(22) Internationales Anmeldedatum:

13. Juni 2000 (13.06.2000)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

199 29 011.3

25. Juni 1999 (25.06.1999) DE

199 29 029.6

25. Juni 1999 (25.06.1999) DE

- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).
- (71) Anmelder (nur fur US): WALTER, Marie-Hélène, Marie-Ange, Christiane, geb. Dubourg (Erbin des verstorbenen Erfinders) [FR/DE]; Zum Galkhausener Bach 17, D-40764 Langenfeld (DE).
- (72) Erfinder: WALTER, Ulrich (verstorben).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur fur US): SCHMALSTIEG. Lutz [DE/DE]; Schnurgasse 45. D-50676 Köln (DE).

LEMMERZ, Ralf [DE/DE]; Am Scherfenbrand 85, D-51375 Leverkusen (DE). WILMES, Oswald [DE/DE]; Emund-ter-Meer-Strasse 28, D-51061 Köln (DE).

- (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, ŁU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regularen Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

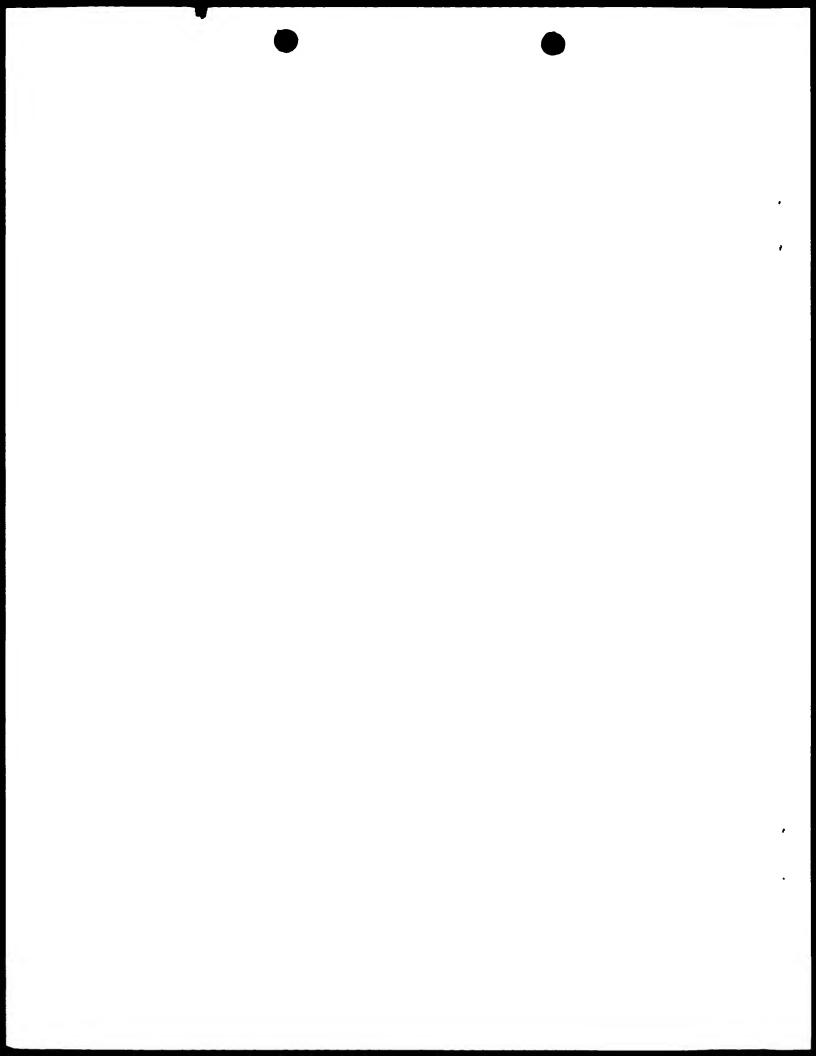
(54) Title: CONDENSATION CROSS-LINKING POLYURETHANE MATERIALS CONTAINING SPECIAL AMINOSILANES, A METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF AND THEIR USE

(54) Bezeichnung: SPEZIELLE AMINOSILANE ENTHALTENDE, KONDENSATIONSVERNETZENDE POLYURETHAN-MASSEN, EIN VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG SOWIE IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to silane polycondensation cross-linking polyurethane materials containing at least one alkoxysilane functional polyurethane, at least one basic filler, at least one conversion product of an amino silane with a maleic acid ester or a fumaric acid ester, at least one organometallic compound, and optionally containing additional auxiliary agents. The invention also relates to a method for producing said polyurethane materials and to the use thereof.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, mindestens einen basischen Füllstoff, mindestens ein Umsetzungsprodukt eines Aminosilans mit einem Malein- oder Fumarsäureester, mindestens eine metallorganische Verbindung und ggf. weitere Hilfsstoffe, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung.





Spezielle Aminosilane enthaltende, kondensationsvernetzende Polyurethanmassen, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung

Die Erfindung betrifft über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, mindestens einen basischen Füllstoff, mindestens ein Umsetzungsprodukt eines Aminosilans mit einem Malein- oder Fumarsäureester, mindestens eine metallorganische Verbindung und ggf. weitere Hilfsstoffe, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung.

Alkoxysilanfunktionelle Polyurethane, die über eine Silanpolykondensation vernetzen, gehören zum lange bekannten Stand der Technik. Ein Übersichtsartikel zur Thematik findet sich in "Adhesives Age" 4/1995, Seite 30 ff. (Autoren: Ta-Min Feng, B. A. Waldmann). Derartige Alkoxysilan-terminierte, feuchtigkeitshärtende Einkomponenten-Polyurethane werden in zunehmendem Maße als weichelastische Beschichtungs-, Dichtungs- und Klebemassen im Bauwesen und in der Automobilindustrie verwendet. Bei diesen Anwendungen werden hohe Anforderungen an das Dehn-, Adhäsionsvermögen und an die Aushärtegeschwindigkeit gestellt.

20

25

5

10

15

Beispielhaft werden derartige Produkte beschrieben in der EP-A-596360, EP-A 831108, der EP-A 807649 oder der EP-A 676403. Bei der Formulierung derartiger Systeme werden typischerweise metallorganische Katalysatoren sowie Haftvermittler vom Aminosilan-Typ mitverwendet. Durch den Zusatz der Aminosilanverbindungen kann es aber oftmals zu Lagerstabilitätsproblemen kommen, insbesondere dann, wenn höhere Anteile an Aminosilanen eingesetzt werden, um eine gute Haftung auf problematischen Untergründen zu erzielen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es daher, Aminosilane enthaltende, über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen bereitzustellen, die eine verbesserte Lagerstabilität aufweisen.

Diese Aufgabe konnte mit der Bereitstellung der nachstehend näher beschriebenen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen gelöst werden.

- Gegenstand der Erfindung sind über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend
 - A) mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan mit Endgruppen der allgemeinen Formel (I)

 R^{1} $(CH_{2})_{n}$ Si Y (I),

in welcher

- 15 R¹ für einen organischen Rest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen,
 - n für eine ganze Zahl von 2 bis 4 steht

und

20

10

X,Y,Z gleiche oder verschiedene organische Reste darstellen, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4
Kohlenstoffatomen, vorzugsweise eine Methoxy- oder Ethoxygruppe
darstellt,

- B) mindestens einen basischen Füllstoff,
- C) mindestens ein Umsetzungsprodukt aus mindestens einem Aminosilan der allgemeinen Formel (II)

$$R^2$$
 $(CH_2)_n$
 Si
 Y
 (II)

in welcher

5

R² für ein Wasserstoffatom, oder eine Aminoethylgruppe steht und

n, X,Y, Z die bei Formel (I)genannte Bedeutung haben,

mit mindestens einem Malein- oder Fumarsäure(ester) der allgemeinen Formel (III)

$$R_3OOC-CH=CH-COOR_3$$
 (III),

in welcher

R₃ für eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen steht,

E) mindestens eine metallorganische Verbindung und

20

25

F) ggf. weitere Hilfsstoffe.

Der Erfindung liegt die überraschende Beobachtung zugrunde, daß die anstelle der üblicherweise als Haftvermittler eingesetzten Aminosilane erfindungsgemäß eingesetzten Addukte von Aminosilanen mit Malein- oder Fumarsäureestern verbesserte mechanische Eigenschaften und eine verbesserte Lagerstabilität bewirken.

Die erfindungsgemäß als Komponente C) einzusetzenden Umsetzungsprodukte aus Malein- bzw. Fumarsäureestern und Aminosilanen sind prinzipiell bekannt und wer-

den beispielhaft beschrieben in der EP-A 596360 oder der EP-A 831108. Gemäß der Lehre dieser Veröffentlichungen werden die Umsetzungsprodukte von Malein- bzw. Fumarsäureestern mit Aminosilanen zur Umsetzung mit Isocyanatprepolymeren eingesetzt. Die Verwendung dieser Produkte als Additiv zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften und zur Verbesserung der Haftung von über Silanpolykondensation vernetzenden Polyurethanen ist bisher nicht bekannt.

-4-

Die als Komponente A) erfindungsgemäß einzusetzenden Alkoxysilan-Endgruppen aufweisenden Polyurethane sind prinzipiell bekannt und werden hergestellt durch Umsetzung langkettiger, vorzugsweise linearer NCO-Prepolymere mit aminofunktionellen Silanen der allgemeinen Strukturformel (II)

$$R^{1}$$
 $(CH_{2})_{n}$
 X
 Si
 Y
 $(II),$

wobei R¹ für einen organischen Rest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise eine Phenylgruppe oder besonders bevorzugt einen Rest der allgemeinen Sturkturformel (IIb) steht,

$$COOR_4$$
 $HC--CH_2$ (IIb),

20

25

5

10

wobei R₄ eine Alkylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht. In der obengenannten Strukturformel steht n für eine ganze Zahl von 2 bis 4, vorzugsweise 3.

X, Y, Z bedeuten in der obengenannten Strukturformel gleiche oder verschiedene organische Reste, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen darstellt. Vorzugsweise ist mindestens einer

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

der Reste eine Methoxy- oder Ethoxygruppe. Besonders bevorzugt steht X, Y und Z für jeweils eine Methoxygruppe.

- 5 -

Beispiele für geeignete aminofunktionelle Silane gemäß Strukturformel (I) sind N-Methyl-3-aminopropyltrimethoxysilan. N-Methyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropyltrimethoxysilan. Vorzugsweise einsetzbar ist N-Phenyl-3-aminopropyltrimethoxysilan. Besonders bevorzugt einsetzbar sind die in der EP-A 596360 beschriebenen Asparaginsäureester wie sie durch Umsetzung von Aminosilanen der allgemeinen Strukturformel (II) mit Malein- oder Fumarsäureestern der Formel (III) entstehen.

5

10

15

20

25

Zur Herstellung der Alkoxysilan-Endgruppen aufweisenden Polyurethane A) einsetzbare NCO-Prepolymere werden in bekannter Weise durch Umsetzung von Polyetherpolyolen vorzugsweise Polyetherdiolen mit Diisocyanaten hergestellt und weisen einen NCO-Gehalt zwischen 0,4 und 4 % auf.

Als basische Füllstoffe B) einsetzbar sind gefällte oder gemahlene Kreiden, Metalloxide, -sulfate, -silicate, -hydroxyde, -carbonate und -hydrogencarbonate. Weitere Füllstoffe sind z. B. verstärkende und nichtverstärkende Füllstoffe, wie z. B. pyrogene oder gefällte Kieselsäuren, Ruß oder Quarzmehl. Sowohl die basischen Füllstoffe als auch die weiteren verstärkenden oder nichtverstärkenden Füllstoffe können gegebenenfalls oberflächen-modifiziert sein. Besonders bevorzugt einsetzbar sind als basische Füllstoffe B) gefällte oder gemahlene Kreiden sowie pyrogene Kieselsäuren. Bei der Komponente B) kann es sich selbstverständlich auch um Gemische von Füllstoffen handeln.

Als Komponente C) werden Umsetzungsprodukte von Aminosilanverbindungen der allgemeinen Strukturformel (II)

WO 01/00700

in welcher

5 R², X, Y, Z und n die oben angegebene Bedeutung haten,

mit Malein- oder Fumarsäure(estern) der allgemeinen Formel (III)

$$R_3OOC-CH=CH-COOR_3$$
 (III)

10

in welcher

R₃ für eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen steht,

15

20

25

eingesetzt.

Beispiele für einsetzbare Aminosilanverbindungen der Formel (II) sind 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Aminopropyltriethoxysilan, N-Aminoethyl-3-aminopropyltriethoxysilan, 3-Aminopropyl-methyldiethoxysilan und N-Aminoethyl-3-aminopropylmethyldimethoxysilan.

In der Formel (III) steht R₃ für einen linearen oder verzweigten aliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit maximal 12 Kohlenstoffatomen. Beispiele für geeignete Malein- bzw. Fumarsäureester sind Maleinsäurediethylester, Maleinsäuredimethylester, Maleinsäurediotylester, Fumarsäurediethylester, Fumarsäurediotylester, Fumarsäurediotylester.

Für den Fall, daß als Aminosilane Produkte eingesetzt werden in denen gemäß Formel (II) R₂ ein Wasserstoffatom bedeutet, entstehen bei der Umsetzung mit den Malein- bzw. Fumarsäureestern gemäß der Lehre der EP-A 596360 Asparaginsäureester der allgemeinen Strukturformel (IV)

5

$$R_3OOC$$
 CH
 N
 $(CH_2)_n$
 Si
 Z
 $(IV),$

in welcher

10 R³, X, Y, Z und n die bei den Formeln (II) und (III) angegebene Bedeutung haben.

Für den besonders bevorzugten Fall, daß als Aminosilane der Formel (II) Produkte eingesetzt werden, in denen R_2 eine Aminoethylgruppe bedeutet, entstehen durch Cyclokondensationsreaktion Piperazinonderivate der allgemeinen Formel (V)

15

$$\begin{array}{c|c} COOR_3 \\ \hline \\ HN \\ \hline \\ N \\ \hline \\ CCH_2)_n \\ \hline \\ Si \\ \hline \\ Z \end{array} \qquad (V),$$

in welcher

20 R₃, X, Y, Z und n die bei Formel (IV) angegebene Bedeutung haben.

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

- 8 -

Als Komponente E) können alle metallorganischen Katalysatoren eingesetzt werden, die bekanntermaßen die Silanpolykondensation fördern. Dies sind insbesondere Verbindungen des Zinns und des Titans. Bevorzugte Zinnverbindungen sind beispielsweise Dibutylzinndilaurat, Dibutylzinndiacetat und Dioctylzinnmaleat, Zinn(II)octoat oder Dibutylzinn-bis-acetoacetonat. Bevorzugte Titanverbindungen sind beispielsweise Alkyltitanate, wie Tetraisopropyltitanat, Tetrabutyltitanat und chelatisierte Titanverbindungen, wie Diisobutyl-bisacetessigsäureethylester-titanat. Besonders bevorzugt wird Dibutylzinn-bis-acetoacetonat als Komponente E) einge-

10

25

setzt.

5

Zusätze und Hilfsstoffe F) im Sinne der Erfindung seien genannt: Trockenmittel, Weichmacher, andere als die unter D) genannten Haftmittel, Thixotropiermittel, Lichtschutzmittel, Pigmente und Schutzmittel, z.B. Fungizide.

Als Trockenmittel seien insbesondere Alkoxysilylverbindungen genannt wie Vinyltrimethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, i-Butyltrimethoxysilan, Hexadecyltrimethoxysilan. Als Weichmacher seien beispielhaft Phtalsäureester, Adipinsäureester, Alkylsulfonsäureester des Phenols oder Phosphorsäureester genannt. Als Thixotropiermittel seien beispielhaft Polyamide, hydrierte Ricinusöl-Folgeprodukte oder auch Polyvinylchlorid genannt. Als Haftvermittler können zusätzlich zu den unter C) genannten Verbindungen Aminosilane der bekannten Art, Epoxysilane und/oder Mercaptosilane eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Polyurethanmassen bestehen vorzugsweise aus 30 bis 80 Gew% an Komponente A), 10 bis 50 Gew% an Komponente B), 0,5 bis 3 Gew% an Komponente C), 0,02 bis 1 Gew% an Komponente D) sowie 0 bis 40 Gew% an Komponente F).

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen. Beim erfindungsgemäßen Verfahrens wird die Komponente C) in einem separaten Reaktionsge-

PCT/EP00/05392

fäß hergestellt, durch Umsetzung der Aminosilane mit den Malein- bzw. Fumarsäureestem analog der Lehre der EP-A 596360 im Temperaturbereich von 0 bis 100 °C. Die Komponenten A), B), D) sowie gegebenenfalls E) werden unter Ausschluß von Feuchtigkeit vermischt und anschließend mit der Komponente C) versetzt.

5

10

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird die erfindungsgemäß einsetzbare Komponente C) in situ erzeugt. Bei dieser Verfahrensweise werden die Komponenten A), B), D) sowie gegebenenfalls E) zusammen mit den zur Herstellung der Komponente C) einsetzbaren Malein- bzw. Fumarsäureestern unter Ausschluß von Feuchtigkeit vermischt und anschließend mit den erfindungsgemäß zur Herstellung der Komponente C) einsetzbaren Aminosilanen versetzt.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch die Verwendung der erfindungsgemäß als Komponente C) einsetzbaren Umsetzungsprodukte von Aminosilanen und Malein- und Fumarsäureestern als Additiv in kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen.

15

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist weiterhin die Verwendung der erfindungsgemäßen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen als Dichtstoff, Kleboder Beschichtungsmaterial.

20

Die erfindungsgemäßen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen zeigen einerseits eine schnelle Aushärtung mit Hautbildungszeiten zwischen 15 und 120 Minuten, besitzen aber andererseits eine hervorragende Lagerstabilität im Temperaturbereich bis zu 60°C.

25

30

Die vernetzten Polymere zeigen verbesserte mechanische Eigenschaften insbesondere eine verbesserte Reißdehnung im Vergleich zu analogen Systemen, die konventionelle Aminosilane enthalten. Außerdem zeichnen sich die erfindungsgemäßen Polyurethanmassen durch hervoragende Haftung insbesondere Naßhaftung auf allen

WO 01/00700 PCT/EP00/05392 - 10 -

erdenklichen Substraten wie beispielsweise Metall, Keramik, Kunststoff, Stein oder Beton aus.

Beispiele

Herstellung eines Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisenden Polyurethans A1)

2000 g eines Polyetherdiols der OH-Zahl 28, hergestellt durch Propoxylierung von Propylenglykol und anschließende Ethoxylierung des Propoxylierungsproduktes (PO/EO-Verhältnis = 80:20) werden mit 155,4 g lsophorondiisocyanat bei 70°C unter Zusatz von 0,02 g Dibutylzinndilaurat bis zum Erreichen des theoretischen NCO-Gehaltes von 0,78 % prepolymerisiert. Nach Abkühlen auf 60°C tropft man 140,4 g N-(3-Trimethoxysilylpropyl)asparaginsäure-diethylester (hergestellt gemäß EP-A 596 360, Bsp. 5) zügig zu und rührt, bis im IR-Spektrum keine Isocyanatbande mehr zu sehen ist. Das erhaltene Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisende Polyurethanprepolymer hat eine Viskosität von 76000 mPas (23°C).

Herstellung eines Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisenden Polyurethans A2)

2000 g eines Polyetherdiols der OH-Zahl 28, hergestellt durch Propoxylierung von Propylenglykol und anschließende Ethoxylierung des Propoxylierungsproduktes (PO/EO-Verhältnis = 80:20) werden mit 155,4 g Isophorondiisocyanat bei 70°C unter Zusatz von 0,02 g Dibutylzinndilaurat bis zum Erreichen des theoretischen NCO-Gehaltes von 0,78 % prepolymerisiert. Nach Abkühlen auf 60°C tropft man 102 g N-Phenyl-3-aminopropyltrimethoxysilan zügig zu und rührt, bis im IR-Spektrum keine Isocyanatbande mehr zu sehen ist. Das erhaltene Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisende Polyurethanprepolymer hat eine Viskosität von 86000 mPas (23°C).

20

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

- 12 -

Beispiel 1

20

25

30

Herstellung einer erfindungsgemäßen Polyurethanmasse

In einem handelsüblichen Planetenmischer werden die folgenden Komponenten zu einem gebrauchsfertigen Dichtstoff verarbeitet:

| | 36,4 Gew-Teile | Polyurethan A1) |
|----|----------------|---|
| | 12,9 GewTeile | Diisoundecylphtalat (Weichmacher) |
| 10 | 0,02 GewTeile | Dibutylzinn-bis-acetoacetonat (10%ig gelöst in Solvent- |
| | | naphta 100) |
| | 1,50 GewTeile | Vinyltrimethoxysilan |
| | 46,2 GewTeile | Fällungskreide (Typ: Socal® U1S2) |
| | 2,00 GewTeile | Maleinsäurediethylester |
| 15 | 1,40 GewTeile | Disparlon® NVG8403 S (Thixotropiermittel der Kusumoto |
| | | Chem. Ltd.) |

Die Mischung wird 10 Minuten bei einem Druck von 100 mbar dispergiert, wobei die Innentemperatur auf 60°C ansteigt. Anschließend werden

1,5 Gew.-Teile N-Aminoethyl-3-aminopropyl-trimethoxysilan

zugegeben und bei einem Druck von 100 mbar durch 10 minütiges Rühren eingearbeitet. Der so hergestellte Dichtstoff zeigt eine ausgezeichnete Standfestigkeit, haftet auf nahezu allen Untergründen und härtet mit einer Hautbildungszeit von 30 Minuten aus.

Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 90 Tagen läßt sich das Produkt noch problemlos verarbeiten und zeigt unveränderte Produkteigenschaften.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

Zugfestigkeit:

2,6 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

268 %

(DIN 53504)

5 Weiterreißwiderstand:

5,4 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

42

Beispiel 2

10 Herstellung einer erfindungsgemäßen Polyurethanmasse

In einem handelsüblichen Planetenmischer werden die folgenden Komponenten zu einem gebrauchsfertigen Dichtstoff verarbeitet:

15 36,0 Gew-Teile

Polyurethan aus Beispiel 2

12,6 Gew.-Teile

Diisoundecylphtalat (Weichmacher)

0,02 Gew.-Teile

Dibutylzinn-bis-acetoacetonat (10%ig gelöst in Solventnaphta

100)

2,20 Gew.-Teile

Vinyltrimethoxysilan

20 45,68 Gew.-Teile

Fällungskreide (Typ: Socal® U1S2 der Fa. Solvay GmbH)

2.0 Gew.- Teile

Maleinsäuredimethylester

1,4 Gew.-Teile

Cabosil® TS 720 (pyrogene Kieselsäure der Fa. Cabot GmbH)

Die Mischung wird 10 Minuten bei einem Druck von 100 mbar dispergiert, wobei die Innentemperatur auf 60°C ansteigt. Anschließend werden

2,1 Gew.-Teile N-Aminoethyl-3-aminopropyl-trimethoxysilan

zugegeben und bei einem Druck von 100 mbar durch 10 minütiges Rühren eingearbeitet.

30

- 14 -

Der so hergestellte Dichtstoff zeigt eine ausgezeichnete Standfestigkeit, haftet auf nahezu allen Untergründen und härtet mit einer Hautbildungszeit von 40 Minuten aus.

Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50 °C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 90 Tagen läßt sich das Produkt noch problemlos verarbeiten und zeigt unveränderte Produkteigenschaften.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

10 Zugfestigkeit:

2,8 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

290 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

7,5 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

46

15 Beispiel 3

Nicht erfindungsgemäßes Vergleichsbeispiel

Beispiel 1 wird wiederholt, mit der Änderung daß kein Maleinsäurediethylester zugesetzt wird. Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 60 Tagen läßt sich das Produkt nicht mehr aus der Kartusche auspressen und ist geliert.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

25 Zugfestigkeit:

 $2,5 \text{ N/mm}^2$ ()

(DIN 53504)

Reißdehnung:

235 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

5,6 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

Beispiel 4

Nicht erfindungsgemäßes Vergleichsbeispiel

- Beispiel 2 wird wiederholt, mit der Änderung, daß kein Maleinsäuredimethylester zugesetzt wird. Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 35 Tagen läßt sich das Produkt nicht mehr aus der Kartusche auspressen und ist geliert.
- Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

Zugfestigkeit:

2,8 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

250 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

7,4 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

46

15

Beispiel 5

Herstellung einer erfindungsgemäßen Polyurethanmasse

In einem handelsüblichen Planetenmischer werden die folgenden Komponenten zu einem gebrauchsfertigen Dichtstoff verarbeitet:

36,4 Gew-Teile

Polyurethan A1)

12,9 Gew.-Teile

Diisoundecylphtalat (Weichmacher)

0,04 Gew.-Teile

Dibutylzinn-bis-acetoacetonat (10%ig gelöst in Solventnaphta

25

100)

1,50 Gew.-Teile

Vinyltrimethoxysilan

46,2 Gew.-Teile

Fällungskreide (Typ: Socal U1S2)

1,40 Gew.-Teile

Disparlon NVG8403 S (Thixotropiermittel der Kusumoto

Chem. Ltd.)

- 16 -

Die Mischung wird 10 Minuten bei einem Druck von 100 mbar dispergiert, wobei die Innentemperatur auf 60°C ansteigt. Anschließend werden

2,5 Gew.-Teile

5

15

N-(3-Trimethoxysilylpropyl)asparaginsäure-diethylester

(hergestellt gemäß EP-A 596 360, Bsp. 5)

zugegeben und bei einem Druck von 100 mbar durch 10 minütiges Rühren eingearbeitet.

Der so hergestellte Dichtstoff zeigt eine ausgezeichnete Standfestigkeit, haftet auf nahezu allen Untergründen und härtet mit einer Hautbildungszeit von 50 Minuten aus.

Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 90 Tagen läßt sich das Produkt noch problemlos verarbeiten und zeigt unveränderte Produkteigenschaften.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

Zugfestigkeit:

2,5 N/mm²

(DIN 53504)

20 Reißdehnung:

310 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

6,1 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

Patentansprüche

- 1. Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend
- 5 A) mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan mit Endgruppen der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 $(CH_{2})_{n}$ Si Y $(I),$

in welcher

- R¹ für einen organischen Rest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen,
- n für eine ganze Zahl von 2 bis 4 steht

und

15

- X,Y,Z gleiche oder verschiedene organische Reste darstellen, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise eine Methoxyoder Ethoxygruppe darstellt,
- B) mindestens einen basischen Füllstoff,
- 25 C) mindestens ein Umsetzungsprodukt aus mindestens einem Aminosilan der allgemeinen Formel (II)

$$R^2$$
 $(CH_2)_n$
 Si
 Y
 $(II),$

in welcher

5 R² für ein Wasserstoffatom, oder eine Aminoethylgruppe steht und

n, X,Y, Z die bei Formel (I)genannte Bedeutung haben,

mit mindestens einem Malein- oder Fumarsäure(ester) der allgemeinen Formel (III)

$$R_3OOC-CH=CH-COOR_3$$
 (III),

in welcher

20

R₃ für eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen steht,

- E) mindestens eine metallorganische Verbindung und
- F) ggf. weitere Hilfsstoffe.
- Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen gemäß
 Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente A) mindestens ein
 Alkoxysilyl-funktionelles Polyurethan der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 N $(CH_2)_r$ Si Y $(I),$

eingesetzt wird, worin X, Y, und Z jeweils für eine Methoxygruppe steht.

5 3. Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente A) mindestens ein Alkoxysilyl-funktionelles Polyurethan der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 $(CH_{2})_{n}$
 X
 Y
 Z
 $(I),$

10

eingesetzt wird, worin R₁ für einen Rest der allgemeinen Formel (IIb)

$$COOR_4$$
 $HC-CH_2$ (IIb),

15

steht, wobei R4 eine Alkylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen bedeutet.

4. Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente D) Aminosilanverbindungen der allgemeinen Formel (V) eingesetzt werden,

COOR₃

$$HN \longrightarrow O \qquad \qquad \downarrow$$

$$N \longrightarrow (CH_2)_n \longrightarrow Si \longrightarrow X \qquad (V),$$

in welcher

- 5 R₃ für einen linearen oder verzweigten aliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit maximal 12 Kohlenstoffatomen steht, n = 3 ist und X,Y,
 Z für Methoxy oder Ethoxyreste stehen.
- 5. Verfahren zur Herstellung von kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1, wonach die Komponenten A), B), C), E) sowie ggf. F) unter Ausschluß von Feuchtigkeit vermischt werden und anschließend mit der Komponente D) versetzt werden.
- Verwendung von kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1 als Dichtstoff, Kleb- oder Beschichtungsmaterial.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 4. Januar 2001 (04.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/00700 A3

C08G 18/10. (51) Internationale Patentklassifikation: 18/28

D-51375 Leverkusen (DE). WILMES, Oswald [DE/DE]; Emund-ter-Meer-Strasse 28, D-51061 Köln (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/05392 (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,

AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR.

HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ,

NO. NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM. TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,

(22) Internationales Anmeldedatum:

13. Juni 2000 (13.06.2000)

Deutsch

D-51368 Leverkusen (DE).

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

(26) Veröffentlichungssprache:

(25) Einreichungssprache:

199 29 011.3 25. Juni 1999 (25.06.1999) 199 29 029.6 25. Juni 1999 (25.06.1999) DE

GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,

SN, TD, TG).

- (71) Anmelder (nur für US): WALTER, Marie-Hélène, Marie-Ange, Christiane, geb. Dubourg (Erbin des verstorbenen Erfinders) [FR/DE]; Zum Galkhausener Bach
- Veröffentlicht:

mit internationalem Recherchenbericht

(72) Erfinder: WALTER, Ulrich (verstorben).

17, D-40764 Langenfeld (DE).

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen 2. August 2001 Recherchenberichts:

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHMALSTIEG, Lutz [DE/DE]; Schnurgasse 45, D-50676 Köln (DE). LEMMERZ, Ralf [DE/DE]: Am Scherfenbrand 85, Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

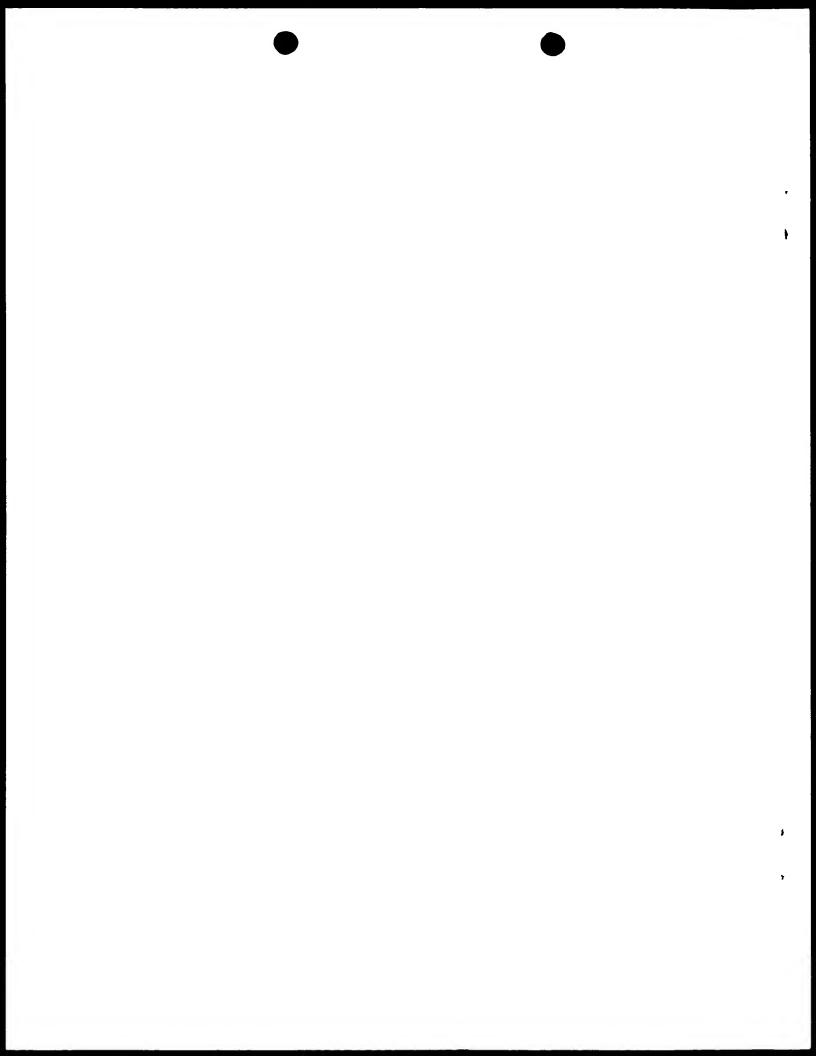
(54) Title: CONDENSATION CROSS-LINKING POLYURETHANE MATERIALS CONTAINING SPECIAL AMINOSILANES, A METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF AND THEIR USE

(54) Bezeichnung: SPEZIELLE AMINOSILANE ENTHALTENDE, KONDENSATIONSVERNETZENDE POLYURETHAN-🔻 MASSEN, EIN VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG SOWIE IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to silane polycondensation cross-linking polyurethane materials containing at least one alkoxysilane functional polyurethane, at least one basic filler, at least one conversion product of an amino silane with a maleic acid ester or a fumaric acid ester, at least one organometallic compound, and optionally containing additional auxiliary agents. The invention also relates to a method for producing said polyurethane materials and to the use thereof.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, mindestens einen basischen Füllstoff, mindestens ein Umsetzungsprodukt eines Aminosilans mit einem Malein- oder Fumarsäureester, mindestens eine metallorganische Verbindung und ggf. weitere Hilfsstoffe, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung.





A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08G18/10 C08G18/28

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system tollowed by classification symbols) $IPC\ 7\ C08G$

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

| C. | DOCUMENTS | CONSIDERED | TO BE | RELEVANT |
|----|-----------|------------|-------|----------|
|----|-----------|------------|-------|----------|

| Category ° | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to daim No. |
|------------|---|----------------------|
| A | EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES) 25 March 1998 (1998-03-25) cited in the application page 2, line 38 -page 4, line 21 page 4, line 47 - line 51; claims; examples | 1-3,5,6 |
| A | EP 0 596 360 A (BAYER) 11 May 1994 (1994-05-11) cited in the application page 2, line 35 -page 4, line 7; claims; examples | 1-3,5,6 |
| Α | EP 0 864 575 A (BAYER) 16 September 1998 (1998-09-16) page 3, line 41 -page 6, line 1/ | 1-6 |

| Further documents are listed in the continuation of box C. | Patent family members are listed in annex. |
|---|---|
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention. "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone. "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family |
| Date of the actual completion of the international search 15 February 2001 | Date of mailing of the international search report 23/02/2001 |
| Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 | Authonzed officer Bourgonje, A |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intermediation No
PCT/EP 00/05392

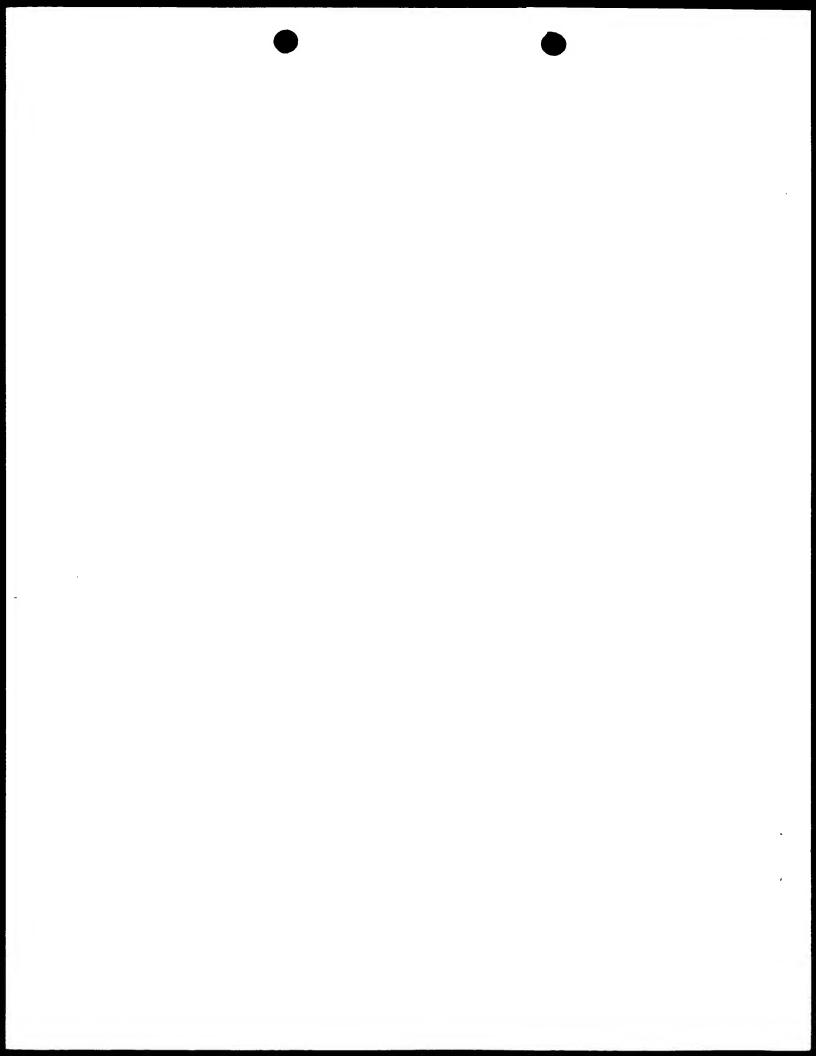
| Category ° | Ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | |
|------------|---|-----------------------|
| gory " | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| | EP 0 807 649 A (BAYER) 19 November 1997 (1997-11-19) page 2, line 19 -page 4, line 39; examples | 1,4 |
| | EP 0 994 138 A (BAYER) 19 April 2000 (2000-04-19) page 3, line 24 -page 4, line 42 page 7, line 1 - line 10 | 1-6 |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |

INTER TIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

lional Application No PCT/EP 00/05392

| | atent document I in search repo | ort | Publication date | | Patent family member(s) | Publication date |
|----|------------------------------------|-----|------------------|----------|----------------------------|--------------------------|
| EP | 831108 | Α | 25-03-1998 | BR JP | 9704796 A 10204144 A | 22-12-1998 04-08-1998 |
| | | | | US | 6001946 A | 14-12-1999 |
| EP | 596360 | Α | 11-05-1994 | DE | 4237468 A | 11-05-1994 |
| | | | | AT | 175970 T | 15-02-1999 |
| | | | | CA | 2102272 A | 07-05-1994 |
| | | | | DE | 59309327 D | 04-03-1999 |
| | | | | ES | 2127777 T | 01-05-1999 |
| | | | | JP | 6211879 A | 02-08-1994 |
| | | | | US | 5364955 A | 15-11-1994 |
| EP | 864575 | Α | 16-09-1998 | us Us | 5908948 A | 01-06-1999 |
| | | | | JP | 10251272 A | 22-09-1998 |
| EP | 807649 | Α | 19-11-1997 | DE | 19619538 A | 20-11-1997 |
| | | | | BR | 9703158 A | 15-09-1998 |
| | | | | CA | 2205106 A | 15-11-1997 |
| | | | | CN | 1170009 A | 14-01-1998 |
| | | | | CZ | 9701478 A | 17-12-1997 |
| | | | | HU | 9700897 A | 28-05-1999 |
| | | | | JP | 10053637 A | 24-02-1998 |
| | | | | PL | 319935 A | 24-11-1997 |
| | | | | US | 5756751 A | 26-05-1998 |
| EP | 994138 | Α | 19-04-2000 | us Us | 6077902 A | 20-06-2000 |
| _ | | | | JP | 2000119366 A | 25-04-2000 |



INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C08G18/10 C08G18/28

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprufstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) $IPK \ 7 \ CO8G$

Recherchierte aber nicht zum Mindestprufstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Wahrend der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

| C. ALS WE | C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | | | | |
|-----------|--|--------------------|--|--|--|
| Kategone® | Bezeichnung der Veröftentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. | | | |
| А | EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES) 25. Mārz 1998 (1998-03-25) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 38 -Seite 4, Zeile 21 Seite 4, Zeile 47 - Zeile 51; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 | | | |
| A | EP 0 596 360 A (BAYER) 11. Mai 1994 (1994-05-11) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 35 -Seite 4, Zeile 7; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 | | | |
| А | EP 0 864 575 A (BAYER) 16. September 1998 (1998-09-16) Seite 3, Zeile 41 -Seite 6, Zeile 1/ | 1-6 | | | |

| Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen | X Siehe Anhang Patentfamilie | | |
|---|---|--|--|
| Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : | *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum | | |
| "A" Veröffenttichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist | oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verstandnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegende | | |
| "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist | Theorie angegeben ist | | |
| *L' Veroffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer | "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtel werden | | |
| anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beansprüchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist | | | |
| Datum des Abschlusses der internationalen Recherche | Absendedatum des internationalen Recherchenberichts | | |
| 15. Februar 2001 | 23/02/2001 | | |
| Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde | Bevollmachtigter Bediensteter | | |
| Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nł, Fax: (+31-70) 340-3016 | Bourgonje, A | | |

INTERNATIONALER CHERCHENBERICHT

| Integon | nies Aktenzeichen |
|---------|-------------------|
| PCT/EP | 00/05392 |

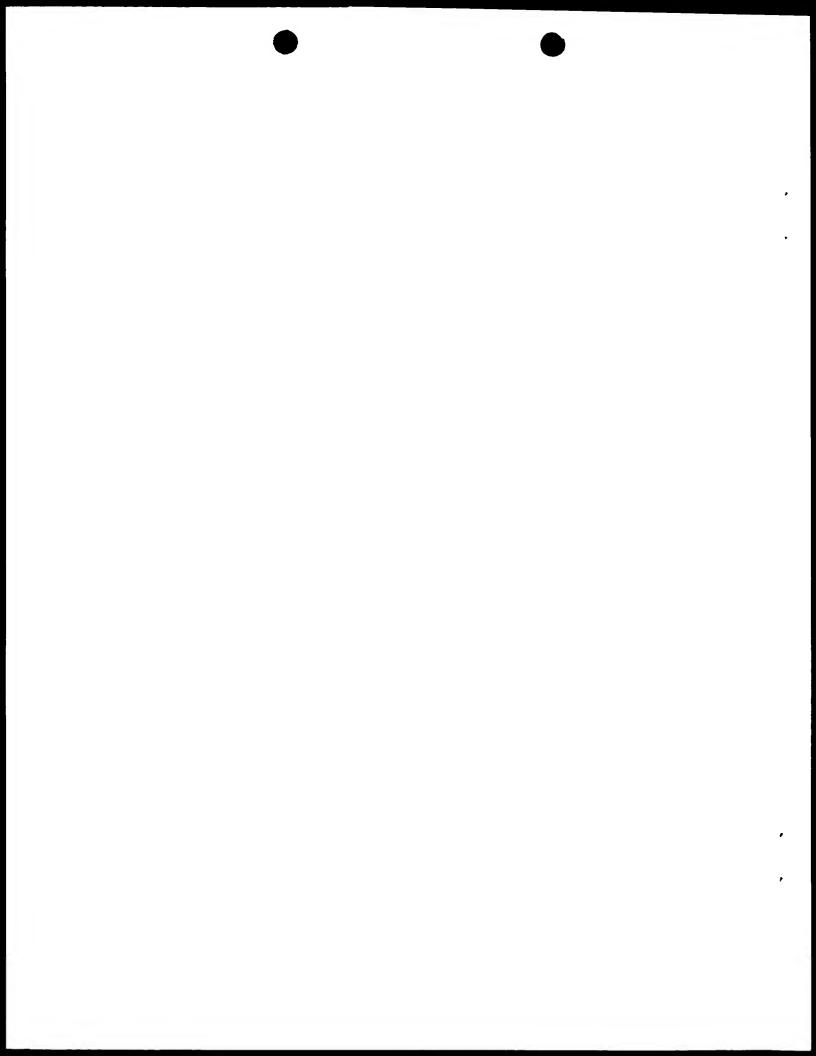
| | | 00/05392 |
|-----------|---|--------------------|
| | ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | |
| Kategone® | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
| A | EP 0 807 649 A (BAYER) 19. November 1997 (1997-11-19) Seite 2, Zeile 19 -Seite 4, Zeile 39; Beispiele | 1,4 |
| A | EP 0 994 138 A (BAYER) 19. April 2000 (2000-04-19) Seite 3, Zeile 24 -Seite 4, Zeile 42 Seite 7, Zeile 1 - Zeile 10 | 1-6 |
| | | |
| | | |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

onales Aktenzeichen
PCT/EP 00/05392

| im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|---|-------------------------------|---|--|
| EP 831108 | Α | 25-03-1998 | BR 9704796 A JP 10204144 A US 6001946 A | 22-12-1998 04-08-1998 14-12-1999 |
| EP 596360 | Α | 11-05-1994 | DE 4237468 A AT 175970 T CA 2102272 A DE 59309327 D ES 2127777 T JP 6211879 A US 5364955 A | 11-05-1994 15-02-1999 07-05-1994 04-03-1999 01-05-1999 02-08-1994 15-11-1994 |
| EP 864575 | Α | 16-09-1998 | US 5908948 A JP 10251272 A | 01-06-1999 22-09-1998 |
| EP 807649 | A | 19-11-1997 | DE 19619538 A BR 9703158 A CA 2205106 A CN 1170009 A CZ 9701478 A HU 9700897 A JP 10053637 A PL 319935 A US 5756751 A | 20-11-1997 15-09-1998 15-11-1997 14-01-1998 17-12-1997 28-05-1999 24-02-1998 24-11-1997 26-05-1998 |
| EP 994138 | Α | 19-04-2000 | US 6077902 A JP 2000119366 A | 20-06-2000 25-04-2000 |



PATENT COOPERATION TREATY

10/019518

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24

Arlington, VA 22202 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

12 February 2001 (12.02.01)

Date of mailing (day/month/year)

International application No. PCT/EP00/05392

International filing date (day/month/year) 13 June 2000 (13.06.00)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 590-WO PWE

Priority date (day/month/year) 25 June 1999 (25.06.99)

Applicant

SCHMALSTIEG, Lutz et al

| 1. | The designated Office is hereby notified of its election made: |
|----|---|
| | X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on: |
| | 18 December 2000 (18.12.00) |
| | in a notice effecting later election filed with the International Bureau on: |
| | |
| 2. | The election X was |
| | was not |
| | made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b). |
| | |
| | APR 2 6 2002 |
| | APR 2 6 2002 |

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

S. Mafla

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

16 1700

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

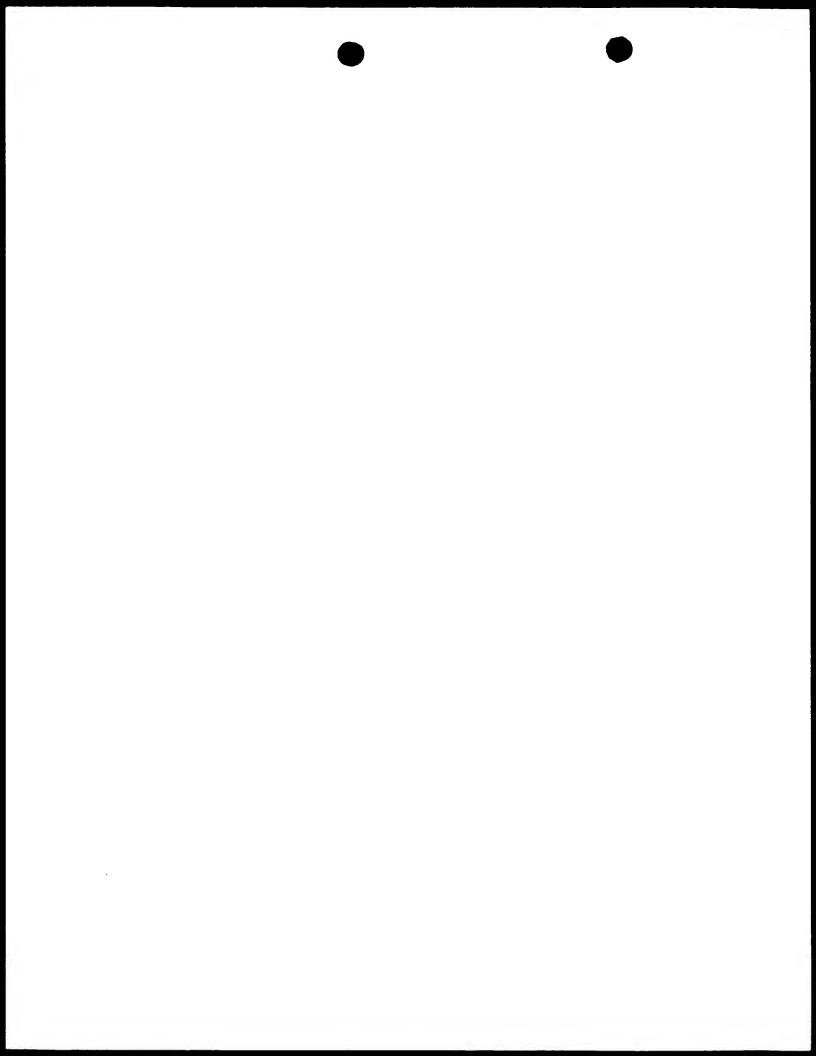


PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

| Applicant's or agent's file reference Le A 33 590-WO PWE | FOR FURTHER ACTION | ACTION SeeNotificationofTransmittalofInternational Preliminary Examination Report (Form PCT IPEA 416) | | | |
|--|---|---|--|--|--|
| International application No. PCT EP00 05392 | International filing date (day n 13 June 2000 (13.00 | - | Priority date (day month year) 25 June 1999 (25,06,99) | | |
| International Patent Classification (IPC) or n C08G 18 10, 18 28 | ational classification and IPC | | | | |
| Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT | | | | | |
| 1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36. 2. This REPORT consists of a total of | | | | | |
| Date of submission of the demand | Date of c | Date of completion of this report | | | |
| 18 December 2000 (18.1 | 2.00) | 06 Au | igust 2001 (06.08.2001) | | |
| Name and mailing address of the IPEA EP | Authoriz | Authorized officer | | | |
| Facsimile No. | Telephor | Telephone No. | | | |

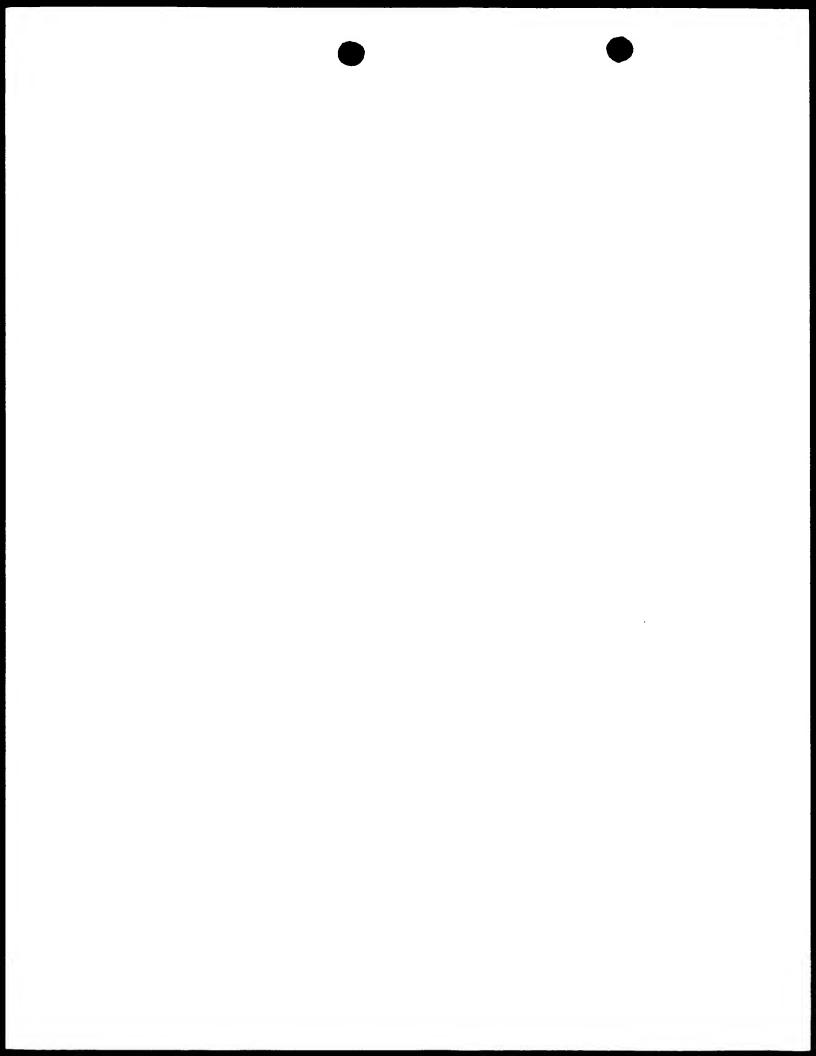




International application No.

PCT EP00 05392

| 1 | . Basi | is of the re | eport | | | | |
|----|-------------------|------------------------|---|--|---|--|--|
| 1 | . With | n regard to | to the elements of ! | the international applicat | tion:* | | |
| | | the inte | emational applicate | ion as originally filed | | | |
| | \boxtimes | the des | scription: | | | | |
| | - | pages | • | | 1-16 | | , as originally filed |
| | | pages | | | | | . filed with the demand |
| | | pages | | | , filed w | with the letter of | |
| | | the clan | | | | | |
| | _ | pages | | | 1-6 | | , as originally filed |
| | | pages | | | , as | amended (together with | h any statement under Article 19 |
| | | pages | | | | | , filed with the demand |
| | | pages | | | | | |
| | | the draw | | | | | |
| | | pages | | | | | , as originally filed |
| | | pages | | | | | , filed with the demand |
| | | pages | | | , filed w | ith the letter of | |
| | | the seque | ence listing part of t | | | | |
| | | | | | | | , as originally filed |
| | | pages | | | | | as originally filed, , filed with the demand |
| | | pages | | | | | . med with the demand |
| | | the lang | guage of a translation guage of publication guage of the transl | or furnished to this Autho ion furnished for the purp on of the international app slation furnished for the | poses of international | al search (under Rule 23. e 48.3(b)). | which is: 3.1(b)). mination (under Rule 55.2 and |
| 3. | With | regard minary ex | to any nucleotid xamination was car | de and/or amino acid rried out on the basis of t | sequence disclosed the sequence listing: | d in the international | application, the international |
| | | | | onal application in writter | | | |
| | | | | ernational application in | | orm. | |
| | | | · · | this Authority in written | | | |
| | | | | this Authority in comput | | | |
| | | internati | tional application as | is filed has been furnished | ed. | | beyond the disclosure in the |
| | | The stat | atement that the in irnished. | formation recorded in (| computer readable f | form is identical to the | ne written sequence listing has |
| 4. | | | | sulted in the cancellation | | | |
| | | | | ges | | | |
| | | | | | | | |
| | | L] tr | he drawings, sheets | ts fig | | | |
| 5. | | This repo | ort has been establ the disclosure as fil | lished as if (some of) the led, as indicated in the Su | e amendments had n upplemental Box (Ri | not been made, since the ule 70.2(c)).** | ney have been considered to go |
| | in this and 70 | is report ([0,1]], | as Coriginally file | led and are not annex | xed to this report s. | since they do not cont | inder Article 14 are referred to itain amendments (Rule 70.16 |
| _ | Ans re | -placeтел | nt sheet containing | g such amendments must | he referred to under | item 1 and annexed to | this report |



International application No POT - EP | 00 | 05392

| Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industria itations and explanations supporting such statement | l applicability; |
|--|------------------|
| | |

| Statement | | | |
|-------------------------------|--------|-------|-----|
| Novelty (N) | Claims | 1 - 6 | YES |
| | Claims | | NO |
| Inventive step (IS) | Claims | 1 - 6 | YES |
| | Claims | | NO |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 2 - 6 | YES |
| | Claims | | NO |

2 Citations and explanations

Reference is made to the following document:

D1: EP-A-0 596 360 (BAYER) 11 May 1994 (1994-05-11), cited in the application

1. Novelty (PCT Article 33(2)):

The subject matter of the current Claims 1 to 6 is novel with respect to the prior art as cited in the international search report. None of the documents cited therein discloses polyurethane compounds prosslinking via silane polycondensation and containing: A) at least one alkoxysilane-functional polyurethane; B) at least one basic filler; C) at least one reaction product from at least one aminosilane and at least one maleic or fumaric acid ester; E) at least one organometallic compound; and F) optionally further auxiliary substances.

2. Inventive step (PCT Article 33(3)):

The subject matter of the current Claims 1 to 6 also involves an inventive step since, for the following reasons, D1, which can be considered the closest prior art, neither alone nor combined with another international



search report citation suggests the claimed compounds:

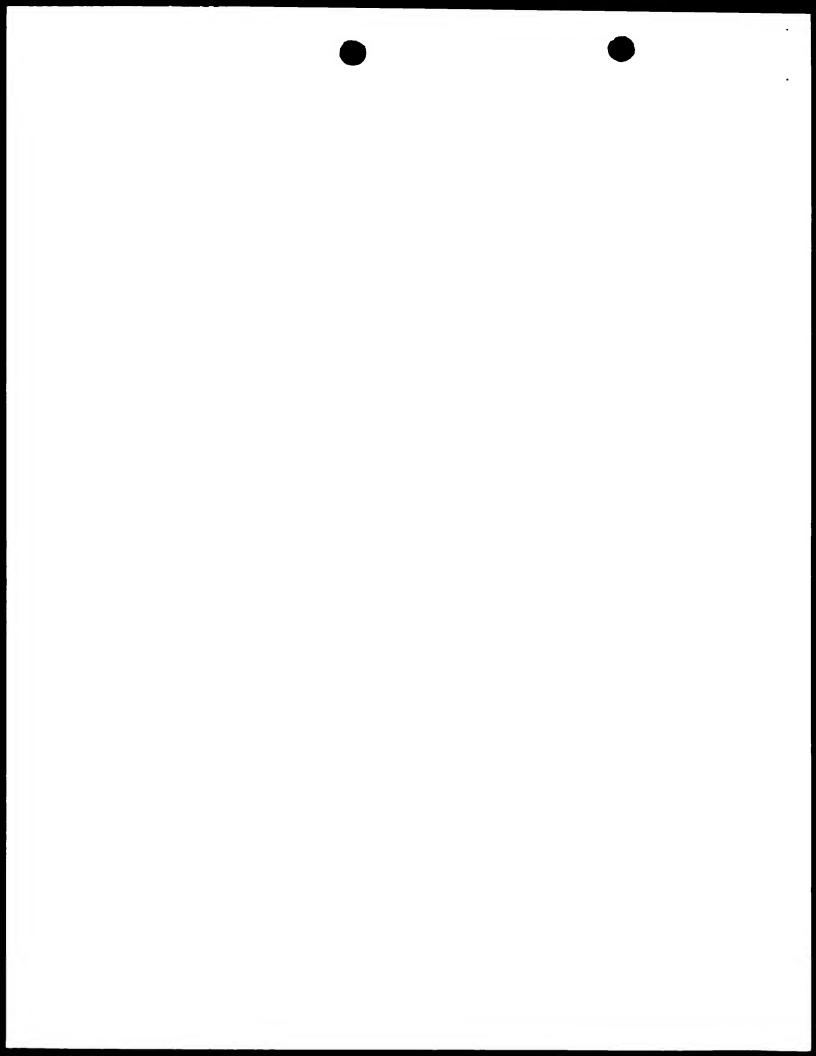
D1 discloses the production of polyurethane compounds crosslinking via silane polycondensation, polyurethane prepolymers being reacted with the reaction products mentioned in C+ above.

The compounds claimed in the current claims differ from those in D1 in that the reaction products mentioned in C) are reacted with alkoxysilane-functional polyurethanes instead of polyurethane prepolymers which are not alkoxysilane-modified.

In comparison with the teaching of D1, the object of the present application was to prepare polyurethane compounds which crosslink via silane polycondensation and are intended to have improved stability during storage whilst otherwise having good mechanical properties and adhering well to the substrate.

Using some examples and comparative examples, the applicant has shown that the stated object can be achieved by the claimed compounds.

Since neither D1 nor any other document can suggest reacting the reaction products produced from aminosilane and maleic or fumaric acid esters directly with alkoxysilane-functional polyurethanes in order to attain polyurethane compounds which are stable during storage, crosslink via silane polycondensation and additionally have good mechanical properties and good adhesion, the subject matter of the application can be recognized as involving an inventive step.



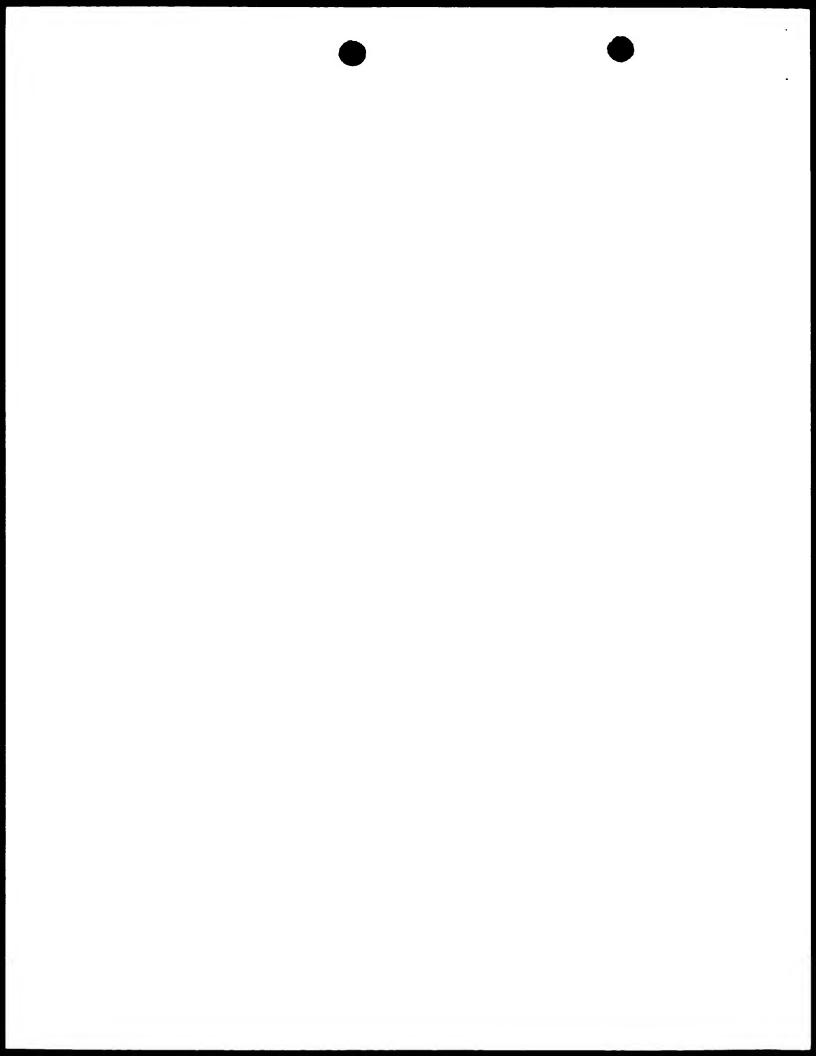
International application No

PCT 'EP 00 05392

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted

- a) All the examples should read [in the German] "Das Produkt wird in eine".
- b) In Example 2, the designation "polyurethane from Example 2" is unclear.
- o In Claim 1, the term "preferably" and the preferred embodiment following this term do not restrict the scope of the claim. This preferred embodiment could at best be made the subject of a further subclaim.

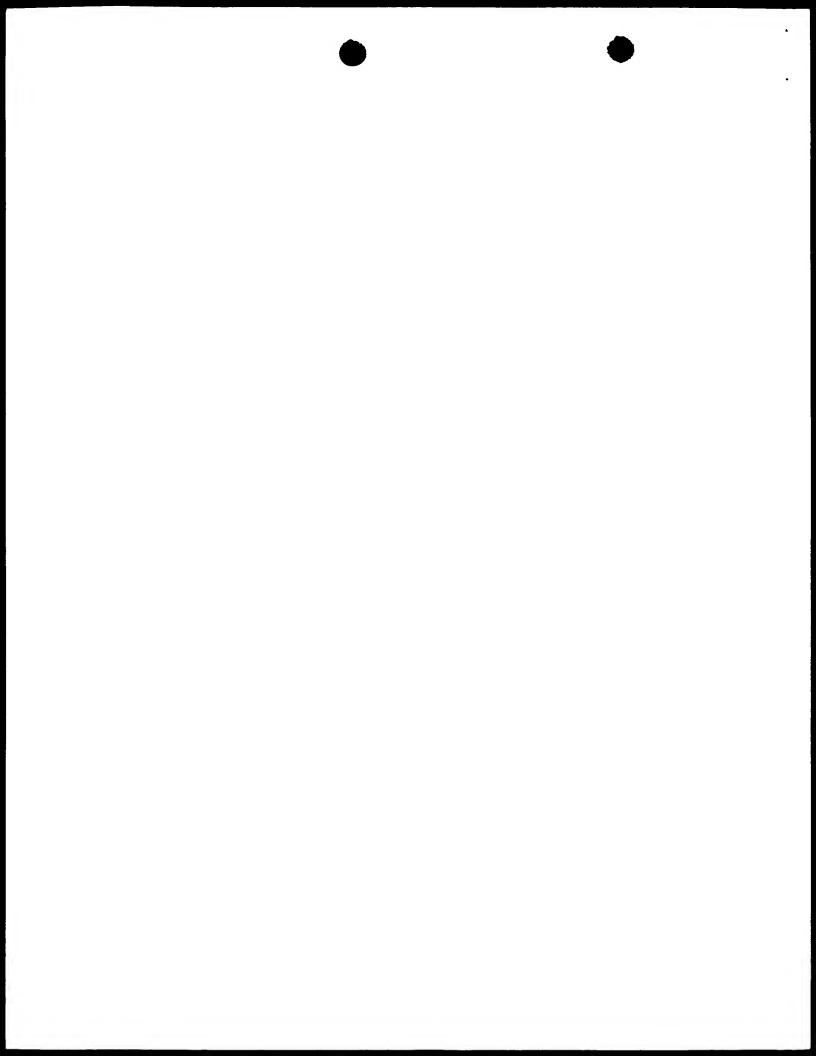


International application No PCT/EP 00/05392

VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

Component D, mentioned in Claims 4 and 5, does not appear in Claim 1 to which both claims refer back. This renders the two claims unclear (PCT Article 6).

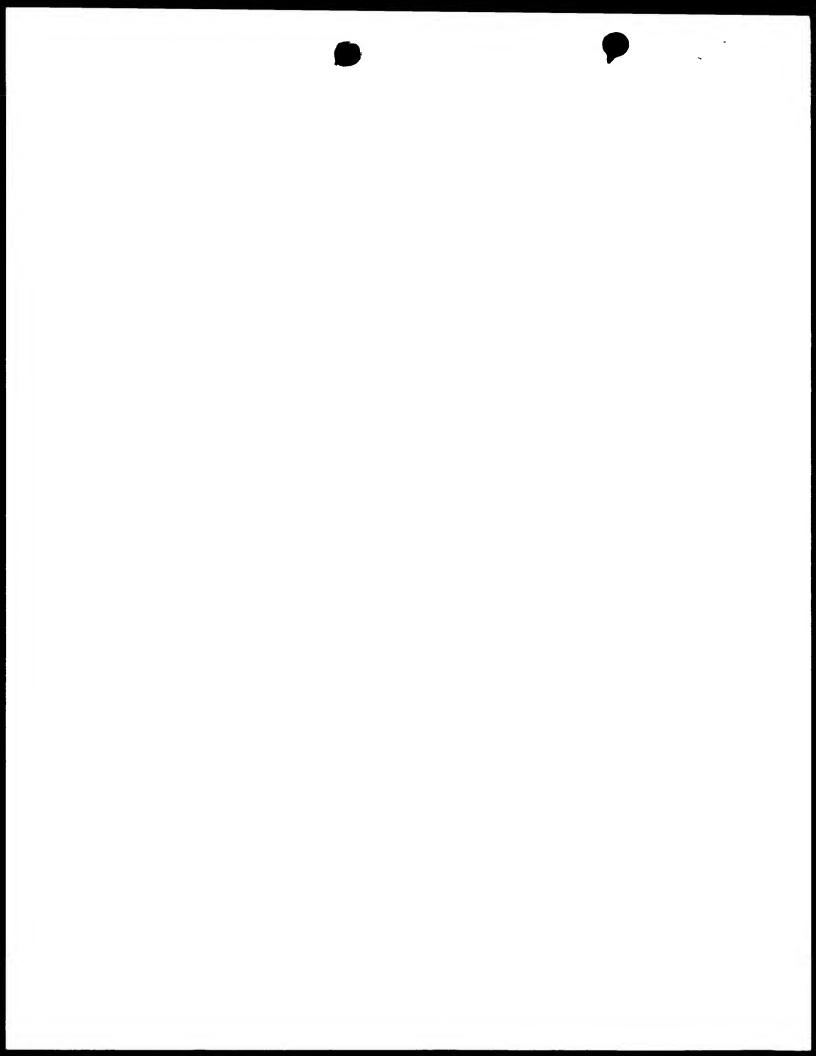


PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

| Aktenzeichen des Anmeiders oder Anwalts | WEITERES siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationale Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, sowie. | | | |
|---|--|--|--|-----|
| Le A 33 590-W0 PWE | VORGEHEN | zutreffend, nachsteher | | |
| Internationales Aktenzeichen | Internationales Anmel | dedatum | (Fruhestes) Prioritatsdatum (Tag Monat Jai | וזר |
| PCT/EP 00/05392 | (Tag Monat Jahr) 13/06/2 | 2000 | | |
| Anmelder | | | | |
| | | | | |
| BAYER AKTIENGESELLSCHAFT | | | | |
| | | | | |
| Dieser internationale Recherchenbericht wurd | de von der Internationale | en Recherchenbehörde e | erstellt und wird dem Anmelder gemäß | |
| Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem In | ternationalen Buro über | mittelt. | | |
| | 2 | | | |
| Dieser internationale Recherchenbericht umfa | aßt insgesamt <u>3 </u> | Blätter. | n Unterlagen zum Stand der Technik bei. | |
| X Daruber hinaus liegt ihm jev | wells eine Kopie der in d | lesem benefit genammer | Tomenagen zum stand der Feermin zeit | |
| Grundlage des Berichts | | | | |
| a Hinsichtlich der Sprache ist die inte | rnationale Recherche a | uf der Grundlage der inte | ernationalen Anmeldung in der Sprache | |
| durchgeführt worden, in der sie eing | gereicht wurde, sofern u | nter diesem Punkt nichts | anderes angegeben ist. | |
| Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b)) | ne ist auf der Grundlage durchgeführt worden. | einer bei der Behörde ei | ngereichten Übersetzung der internationalen | |
| b. Hinsichtlich der in der internationale | en Anmeldung offenbarte | en Nucleotid- und/oder | Aminosäuresequenz ist die internationale | |
| Recherche auf der Grundlage des S in der internationalen Anme | | | | |
| zusammen mit der internati | | | ngereicht worden ist. | |
| bei der Behörde nachträglic | | | | |
| bei der Behörde nachträglic | | | ist. | |
| | hträglich eingereichte so | chriftliche Seguenzprotol | koll nicht über den Offenbarungsgehalt der | |
| | | | m schriftlichen Sequenzprotokoll entsprecher | n. |
| 2. Bestimmte Ansprüche ha | han sich als nicht rech | erchierhar erwiesen (S | iehe Feld I). | |
| 2. Bestimmte Ansprüche ha 3. MangeInde Einheitlichkei | | | 10.10 1 0.10 1/1. | |
| 3. Mangemae Emmersioniker | tuoi Eiimaang (olono | 0.0,. | | |
| 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfil | ndung | | | |
| wird der vom Anmelder ein | | hmigt. | | |
| wurde der Wortlaut von der | Behörde wie folgt festg | esetzt: | | |
| | | | | |
| | | | | |
| 5 Use sightlish day 7 ammenfangung | | | | |
| 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung wird der vom Anmelder ein | gereichte Wortlaut gene | hmiat | | |
| wurde der Wortlaut nach R Anmelder kann der Behörd | egel 38.2b) in der in Fel le innerhalb eines Mona | d III angegebenen Fassi ts nach dem Datum der i | ing von der Behörde festgesetzt. Der Absendung dieses internationalen | |
| Recherchenberichts eine S 6. Folgende Abbildung der Zeichnungen | - | | : Abb. Nr | |
| wie vom Anmelder vorgeso | | | X keine der Abb. | |
| weil der Anmelder selbst ke | • | nlagen hat. | | |
| weil diese Abbildung die Ei | | | | |
| | | | | |





Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/05392

| | | | _ |
|-----------------------|-----------|---------------------------------|---|
| A. KLASSIFIZ IPK 7 | COSG18/10 | ELDUNGSGEGENSTANDE C08G18/28 | S |

Nach der Internationalen Patentklassifikation dPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprutstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 CO8G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprufstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Wahrend der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank) und extl. verwendete Suchbegriffe)

| ategone | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr Anspruch Nr |
|---------|--|------------------|
| • • , | EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES) 25. März 1998 (1998-03-25) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 38 -Seite 4, Zeile 21 Seite 4, Zeile 47 - Zeile 51; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 |
| d V | | 1-3,5,6 |
| A ~ | EP 0 864 575 A (BAYER) 16. September 1998 (1998-09-16) Seite 3, Zeile 41 -Seite 6, Zeile 1 -/ | 1-6 |

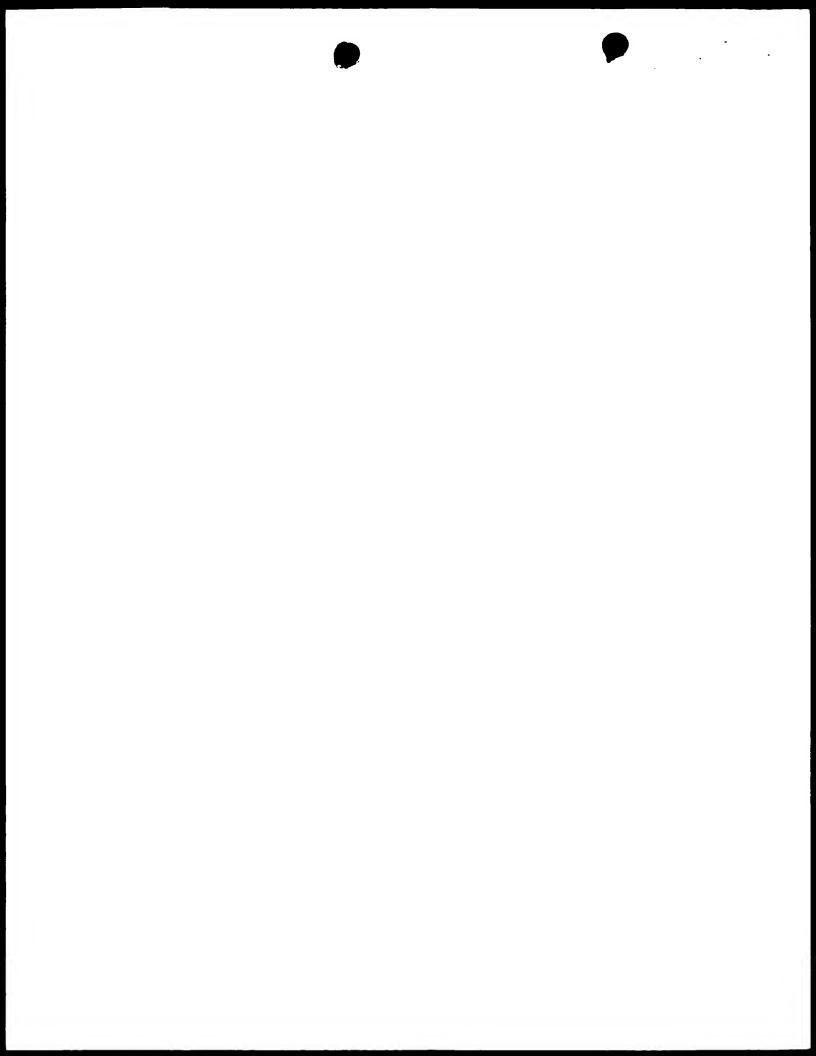
| | itere Veröftentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu | X Siehe Anhang Patentfamilie |
|--|--|---|
| Besonder 'A' Veröfte aber 'E' alteres Anme 'L' Veröfte schei ande soll o ausg 'O' Veroff eine 'P' Veroff dem | re Kategonen von anjegebenen verörferknings. entlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist sollt besonders bedeutsam anzusehen ist sollt besonders bedeutsam anzusehen ist sollt besonders bedeutsam entlichten veröffentlicht worden ist seinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer inen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer in Becherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden ider die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie leführt) lentlichung, die sich auf eine mundliche Offenbarung. Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht ientlichung, die vor dem internationalen. Anmeldedatum, aber nach beansprüchten Pnoritalsdatum veröffentlicht worden ist | *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Pnoritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beansprüchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeil berühend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beansprüchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeil berühend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung die Mitglied derselben Patentfamilie ist *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist |
| Datum des | s Abschlusses der internationalen Recherche | Absendedatum des mierraments |
| | 15. Februar 2001 | 23/02/2001 |
| Name und | Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde | Bevollmachtigter Bediensteter |

1

Europaisches Patentamt. P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl.

Fax (+31-70) 340-3016

Bourgonje, A

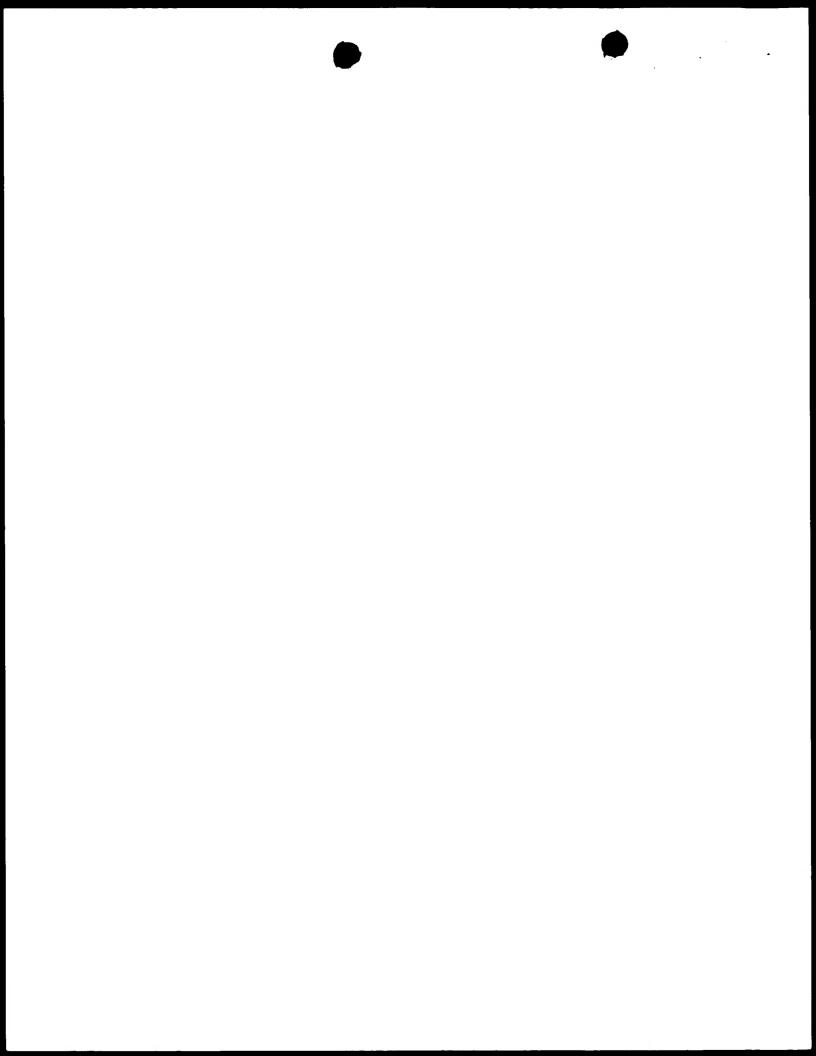




Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/05392

| C (Fortsetz | ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | <u> </u> | |
|-------------|--|---------------|------------------|
| Kategone: | Bezeichnung der Veröffentlichung soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kom | nmenden Teile | Betr Anspruch Nr |
| A į | EP 0 807 649 A (BAYER) 19. November 1997 (1997-11-19) Seite 2. Zeile 19 -Seite 4, Zeile 39; Beispiele | | 1.4 |
| A | | | 1-6 |
| | | | |
| | | | |
| | | | |

1



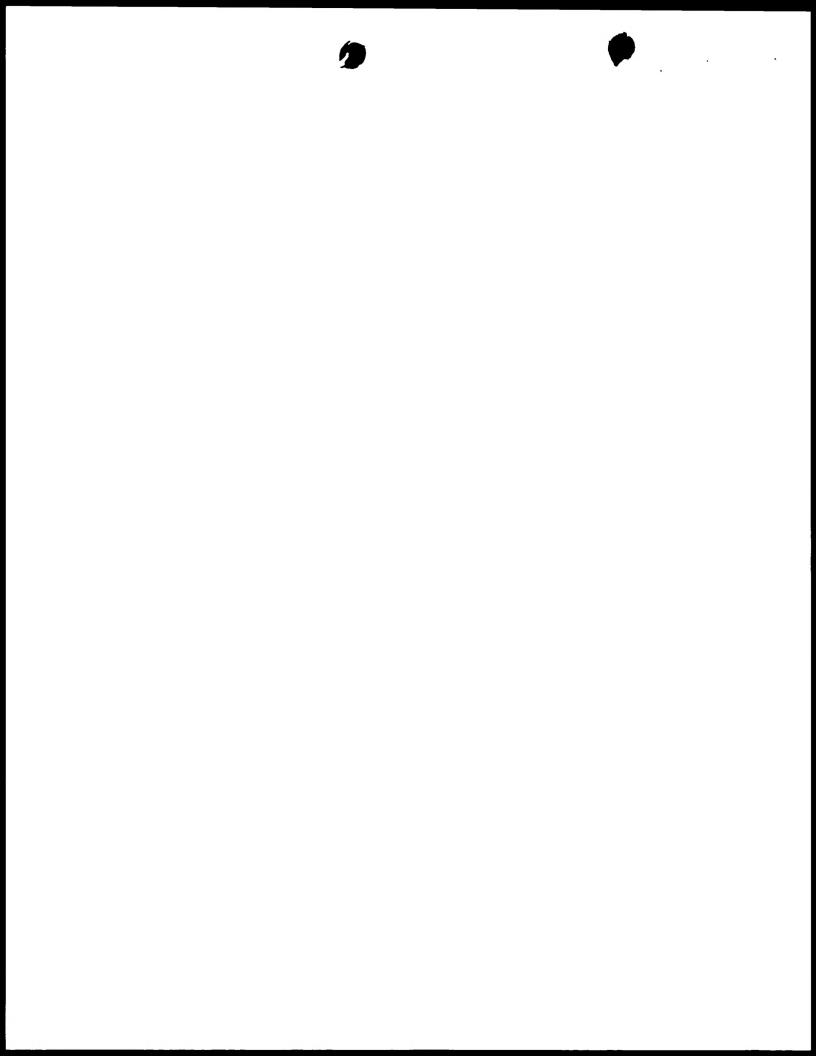


INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No PCT/EP 00/05392

| Patent document cited in search repo | rt | Publication date | | atent family member(s) | Publication date |
|--------------------------------------|----|------------------|--|--|--|
| EP 831108 | A | 25-03-1998 | BR JP US | 9704796 A 10204144 A 6001946 A | 22-12-1998 04-08-1998 14-12-1999 |
| EP 596360 | Α | 11-05-1994 | DE AT CA DE ES JP US | 4237468 A 175970 T 2102272 A 59309327 D 2127777 T 6211879 A 5364955 A | 11-05-1994 15-02-1999 07-05-1994 04-03-1999 01-05-1999 02-08-1994 15-11-1994 |
| EP 864575 | Α | 16-09-1998 | US JP | 5908948 A 10251272 A | 01-06-1999 22-09-1998 |
| EP 807649 | A | 19-11-1997 | DE BR CA CN CZ HU JP PL US | 19619538 A 9703158 A 2205106 A 1170009 A 9701478 A 9700897 A 10053637 A 319935 A 5756751 A | 20-11-1997 15-09-1998 15-11-1997 14-01-1998 17-12-1997 28-05-1999 24-02-1998 24-11-1997 26-05-1998 |
| EP 994138 | Α | 19-04-2000 | US JP 2 | 6077902 A 000119366 A | 20-06-2000 25-04-2000 |



115

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 0 8 AUG 2001

PCT

PCT WIPO

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

| | | (Altikel 50 dild 1 leg | C1 7 O 1 O | | | | | |
|------------------|--|---|--|---|--|--|--|--|
| Aktenzeiche | n des Anmelders oder Anwalts | | | ilung über die Übersendung des internationalen | | | | |
| Le A 33 5 | 90-WO PWE | WEITERES VORGEHEN | | Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) | | | | |
| International | es Aktenzeichen | Internationales Anmeldedatum(Ta | ag/Monat/Jahr) | | | | | |
| PCT/EP00 | 0/05392 | 13/06/2000 | | 25/06/1999 | | | | |
| 1 | Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G18/00 | | | | | | | |
| Anmelder | | | | | | | | |
| BAYER A | KTIENGESELLSCHAFT | | | | | | | |
| Behörd | Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt. | | | | | | | |
| □ Au ur Be | Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT). Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter. | | | | | | | |
| 3. Dieser | Bericht enthält Angaben zu Grundlage des Bericht Priorität Keine Erstellung eines | ts | derische Täti | igkeit und gewerbliche Anwendbarkeit | | | | |
| iV | Mangelnde Einheitlich | | | | | | | |
| V | Begründete Feststellur gewerblichen Anwend | ng nach Artikel 35(2) hinsichtlict barkeit; Unterlagen und Erkläru | n der Neuheit ngen zur Stüt | , der erfinderischen Tätigkeit und der Izung dieser Feststellung | | | | |
| VI | Bestimmte angeführte | Unterlagen | | | | | | |
| VII | Bestimmte M\u00e4ngel der | r internationalen Anmeldung | | | | | | |
| VIII | □ Bestimmte Bemerkung | gen zur internationalen Anmeldu | ing | | | | | |
| Datum der E | inreichung des Antrags | Datum | Datum der Fertigstellung dieses Berichts | | | | | |
| 18/12/200 | 00 | 06.08. | 06.08.2001 | | | | | |
| | Postanschrift der mit der internati | onalen vorläufigen Bevoll | mächtigter Bed | iensteter generalities | | | | |
| Prüfung bea | uutragten Behörde: Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 52365 | · · · | | Kram San | | | | |
| 1 | Fax: +49 89 2399 - 4465 | Tet. N | r. +49 89 2399 | 8661 | | | | |

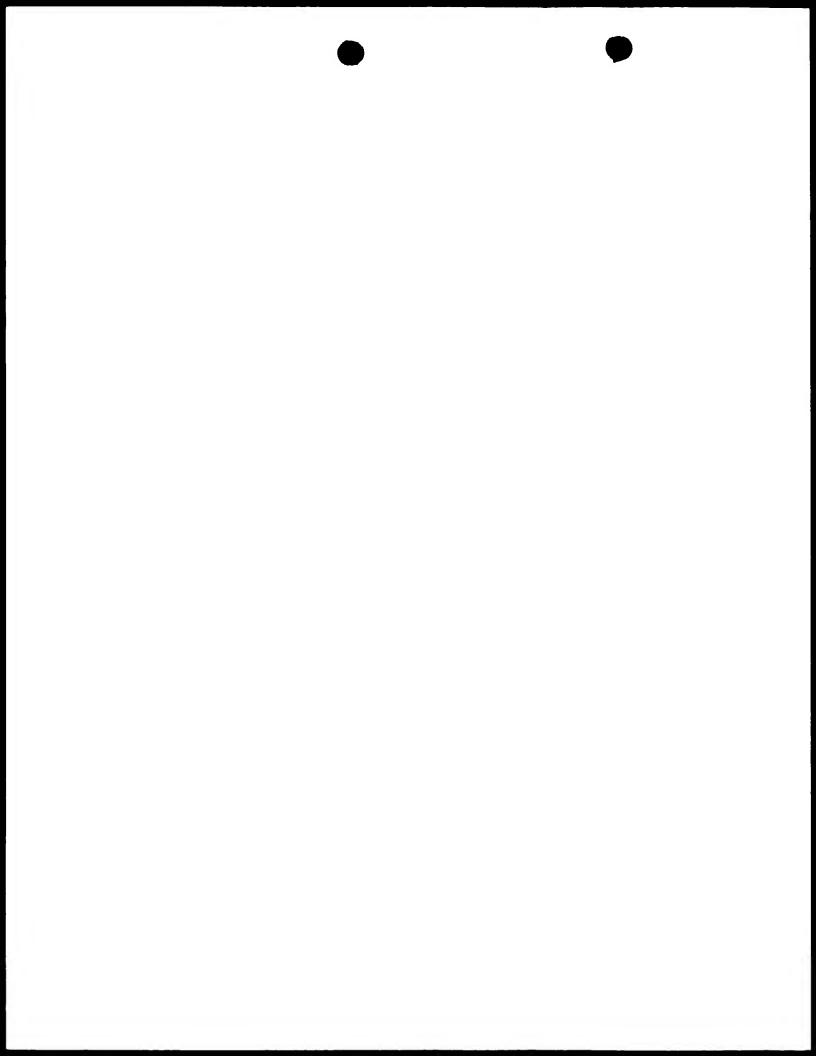


INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05392

| Grundlage des E | Berichts |
|-------------------------------------|----------|
|-------------------------------------|----------|

| 1. | Auf eing | Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (<i>Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine</i> Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)): Beschreibung, Seiten: | | | | | | | |
|----|--------------|---|--|--|--|--|--|--|--|
| | 1-16 | 6 | ursprüngliche Fassung | | | | | | |
| | Pat | entansprüche, Nr.: | | | | | | | |
| | 1-6 | | ursprüngliche Fassung | | | | | | |
| | | | | | | | | | |
| 2. | die | internationale Anme | e: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der eldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern anderes angegeben ist. | | | | | | |
| | | ie Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache ingereicht; dabei handelt es sich um | | | | | | | |
| | | die Sprache der Üb Regel 23.1(b)). | oersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach | | | | | | |
| | | die Veröffentlichun | gssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)). | | | | | | |
| | | die Sprache der Übist (nach Regel 55. | persetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden 2 und/oder 55.3). | | | | | | |
| 3. | Hins inte | sichtlich der in der ir rnationale vorläufige | nternationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die e Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das: | | | | | | |
| | | in der international | en Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist. | | | | | | |
| | | zusammen mit der | internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. | | | | | | |
| | | bei der Behörde na | achträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist. | | | | | | |
| | | bei der Behörde na | achträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. | | | | | | |
| | | Die Erklärung, daß Offenbarungsgeha | das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den It der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt. | | | | | | |
| | | | die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen entsprechen, wurde vorgelegt. | | | | | | |
| 4. | Auf | grund der Änderung | en sind folgende Unterlagen fortgefallen: | | | | | | |
| | | Beschreibung. | Seiten: | | | | | | |
| | | Ansprüche, | Nr.: | | | | | | |
| | | Zeichnungen, | Blatt: | | | | | | |
| | | | | | | | | | |



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05392

5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behorde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen;sie sind diesem Bericht beizufügen).

- 6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
- V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- 1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 1

Nein: Ansprüche

Erfinderische Tätigkeit (ET)

Ja: Ansprüche 1-6

Nein: Ansprüche

Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)

Ja: Ansprüche 1-6

- Nein: Ansprüche
- 2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist: siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken: siehe Beiblatt



Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit und der erfinderischen Tätigkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1: EP-A-0 596 360 (BAYER) 11. Mai 1994 (1994-05-11) in der Anmeldung erwähnt

1. Neuheit (Art.33(2) PCT):

Der Gegenstand vorliegender Ansprüche 1 bis 6 ist neu im Vergleich zum Stand der Technik, wie er im Internationalen Recherchenbericht zitiert worden ist. In keinem der dort genannten Dokumente sind nämlich über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen bekannt, die A) mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, B) mindestens einen basischen Füllstoff, C) mindestens ein Umsetzungsprodukt aus mindestens einem Aminosilan und mindestens einem Malein- oder Fumarsäureester, E) mindestens eine metallorganische Verbindung und F) ggf. weitere Hilfsstoffe enthält.

2. Erfinderische Tätigkeit (Art.33(3) PCT):

Der Gegenstand vorliegender Ansprüche 1 bis 6 beruht auch auf einer erfinderischen Tätigkeit, da weder in D1, das als nächstliegender Stand der Technik betrachtet werden kann, allein noch in Verbindung mit einem anderen, im Internationalen Recherchenbericht genannten Dokument aus den folgenden Gründen ein Hinweis auf die beanspruchten Massen zu entnehmen ist:

D1 offenbart die Herstellung von über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, wobei Polyurethanprepolymere mit den oben unter C) genannten Umsetzungsprodukten umgesetzt werden.



Die in vorliegenden Ansprüchen beanspruchten Massen unterscheiden sich von denjenigen aus D1 bekannten dadurch, daß die unter C) genannten Umsetzungsprodukte mit alkoxysilanfunktionellen Polyurethanen umgesetzt werden anstelle von Polyurethanprepolymeren, die nicht Alkoxysilan-modifiziert sind.

Im Vergleich zur Lehre aus D1 bestand die Aufgabe in vorliegender Anmeldung darin, über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen zur Verfügung zu stellen, die eine verbesserte Lagerstabilität aufweisen, ansonsten aber gute mechanische Eigenschaften besitzen und gut am Substrat haften sollen.

Die Anmelderin hat in einigen Beispielen und Vergleichsbeispielen gezeigt, daß die gestellte Aufgabe durch die beanspruchte Massen gelöst werden konnte.

Da aus D1 und aus keinem weiteren Dokument nahegelegt werden konnte, die aus Aminosilan und Malein- oder Fumarsäureestern hergestellten Umsetzungsprodukte direkt mit alkoxysilanfunktionellen Polyurethanen umzusetzen, um zu lagerstabilen über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen zu gelangen, die zudem gute mechanische Eigenschaften und eine gute Haftung aufweisen, kann das Beruhen des Anmeldungsgegenstandes auf einer erfinderischen Tätigkeit anerkannt werden.

Zu Punkt VII

Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

- a) In allen Beispielen muß es stets "Das Produkt wird in eine ..." heißen.
- b) In Beispiel 2 ist die Bezeichnung "Polyurethan aus Beispiel 2" mißverständlich.
- c) In Anspruch 1 hat der Ausdruck "vorzugsweise" und die bevorzugte Ausführungsform, die diesem Ausdruck folgt, keine beschränkende Wirkung auf den Umfang des Anspruchs. Diese bevorzugte Ausführungsform könnte allenfalls zum Gegenstand eines weiteren Unteranspruchs gemacht werden.



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05392

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Die in Ansprüchen 4 und 5 erwähnte Komponente D findet sich nicht in Anspruch 1 wieder, auf den beide Ansprüche rückbezogen sind. Dies macht beide Ansprüche unklar (Art. 6 PCT).

